

1 PN=JP 3504732

008433205

WPI Acc No: 1990-320205/199042

XRAM Acc No: C90-138630

Alkylation of aromatics with olefin(s) - to give gasoline boiling range prod., using zeolite catalyst in riser reactor with multiple olefin injection points

Patent Assignee: MOBIL OIL CORP (MOBI )

Inventor: HARANDI M; KUSHNERICK J D; OWEN H; HARANDI M N

Number of Countries: 015 Number of Patents: 008

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
WO 9011266	A	19901004				199042 B
US 4992607	A	19910212	US 89325736	A	19890320	199109
EP 418370	A	19910327	EP 90905939	A	19900319	199113
JP 3504732	W	19911017	JP 90505846	A	19900319	199148
EP 418370	B1	19941130	EP 90905939	A	19900319	199501
			WO 90US1478	A	19900319	
DE 69014510	E	19950112	DE 614510	A	19900319	199507
			EP 90905939	A	19900319	
			WO 90US1478	A	19900319	
EP 418370	A4	19910911	EP 90905939	A	19900000	199518
JP 2866195	B2	19990308	JP 90505846	A	19900319	199915
			WO 90US1478	A	19900319	

Priority Applications (No Type Date): US 89325736 A 19890320

Cited Patents: US 3751506; US 3755483; US 4016218; US 4140622; US 4209383;

US 4393262; US 4827069; US 4851602; WO 8907586; DE 2756221; GB 1273252

Patent Details:

Patent No Kind Lan Pg Main IPC Filing Notes

WO 9011266 A 30

Designated States (National): CA JP

Designated States (Regional): AT BE CH DE DK ES FR GB IT LU NL SE

US 4992607 A 16

EP 418370 A

Designated States (Regional): BE DE FR GB IT NL

EP 418370 B1 E 15 C07C-002/64 Based on patent WO 9011266

Designated States (Regional): BE DE FR GB IT NL

DE 69014510 E C07C-002/64 Based on patent EP 418370

Based on patent WO 9011266

JP 2866195 B2 12 C07C-015/02 Previous Publ. patent JP 3504732

Based on patent WO 9011266

Abstract (Basic): WO 9011266 A

Alkylation of C6-C8 aromatic hydrocarbons using C4-olefins is effected at an aromatic:olefin wt. ratio of at least 5 (pref. 10-15):1

in presence of a fluidised zeolite catalyst in a riser reactor having multiple olefin feed injection points.

USE/ADVANTAGE - The process enables conventional petroleum refining steps to be combined with a process which gives a gasoline boiling range alkylated aromatic prod. by reacting the olefin fuel gas stream from an FCC process with the aromatic reformat stream from a catalytic reforming process. By using multiple olefin injection points in the riser reactor, a high aromatics:olefin ratio is maintained thus allowing max. alkylation conversion combined with min. olefin oligomerisation and coke formation. The alkylated prod. is useful as a gasoline blending stock. The novel alkylation process can be combined with a regeneration process for the zeolite catalyst. (30pp Dwg. No. 0/3)

Abstract (Equivalent): EP 418370 B

A process for producing an alkyl aromatic product comprising contacting a feed stream comprising 4C olefins with a feedstream comprising 6-8C aromatic hydrocarbons at an aromatic to olefin weight ratio of at least 5:1 in the presence of a fluidised zeolite catalyst in a riser reactor having multiple olefin feed injection points to alkylate the 6-8C aromatics with the olefins and produce the required alkyl aromatic hydrocarbon prod.

Dwg. 0/3

Abstract (Equivalent): US 4992607 A

Prodn. of gasoline comprises contacting a feedstream comprising C4-olefin hydrocarbons with a feedstream comprising 6-8C aromatic hydrocarbons at an aromatic to olefin wt.

ratio of 5:1-20:1 over a fluidised zeolite catalyst at 350-900deg. F. and 20-650 psig in a riser reactor having multiple olefin feed injection points to alkylate the 6-8C aromatics with the olefins to form 7-11C alkyl aromatic hydrocarbon gasoline prods. The injection points are spaced along the height of the riser reactor and the aromatic to olefin wt. ratio is maintained throughout the riser reactor. A portion of the catalyst is withdrawn from the riser for regeneration of the catalyst. The withdrawn catalyst contains only a minor amt. of deposited coke. ADVANTAGE - Overall prodn. of gasoline prods. is increased.

(16pp)

Title Terms: ALKYLATED; AROMATIC; OLEFIN; GASOLINE; BOILING; RANGE; PRODUCT ; ZEOLITE; CATALYST; RISER; REACTOR; MULTIPLE; OLEFIN; INJECTION; POINT

Derwent Class: E14; H04

International Patent Class (Main): C07C-002/64; C07C-015/02

International Patent Class (Additional): B01J-029/28; B01J-029/40;

C07B-061/00; C07C-002/66; C07C-002/70; C10G-035/06

File Segment: CPI

Manual Codes (CPI/A-N): E10-J02B3; H04-D02; H04-F02D; N06-A

Chemical Fragment Codes (M3):

\*01\* G010 G011 G012 G013 G014 G015 G016 G017 G018 G020 G021 G022 G023  
G024 G029 G040 G100 M210 M211 M212 M213 M214 M231 M232 M233 M240

M281 M282 M283 M320 M414 M510 M520 M531 M540 M610 M720 M903 M904  
N203 N213 N221 N222 N311 N318 N442 N514 N515 N523 N524 Q414 R00707-P  
R00749-P R00763-P R07339-P R07341-P R17194-P 9042-E7601-P  
9042-E7602-P

Derwent Registry Numbers: 0306-S; 0326-S; 0619-S; 0707-P; 0749-P; 0763-P;  
0785-S; 0845-S; 0862-S; 0964-S

Specific Compound Numbers: R00707-P; R00749-P; R00763-P; R07339-P; R07341-P  
; R17194-P

Generic Compound Numbers: 9042-E7601-P; 9042-E7602-P

?

## ⑪ 公表特許公報(A)

平3-504732

⑫ 公表 平成3年(1991)10月17日

⑬ Int.Cl.<sup>8</sup>  
C 07 C 2/70  
B 01 J 29/28  
C 07 C 15/02

識別記号

庁内整理番号

7537-4H

※

審査請求 未請求  
予備審査請求 未請求

部門(区分) 3(2)

(全 12 頁)

⑭ 発明の名称 アルキル芳香族炭化水素の製造方法

⑮ 特 願 平2-505846

⑯ 出 願 平2(1990)3月19日

⑰ 翻訳文提出日 平2(1990)11月20日

⑱ 国際出願 PCT/US90/01478

⑲ 国際公開番号 WO90/11266

⑳ 国際公開日 平2(1990)10月4日

優先権主張 ㉑ 1989年3月20日 ㉒ 米国(US) ㉓ 325,736

㉔ 発 明 者 ハランダイ、モーセン・ナデイ アメリカ合衆国 08648 ニュージャージー、ローレンスヴィル、  
ミ キヤットバード・コート 12番

㉕ 出 願 人 モービル・オイル・コーポレイ アメリカ合衆国 22037 バージニア、フェアファックス、ギヤロ  
シヨン ウズ・ロード 3225番

㉖ 代 理 人 弁理士 青山 孫 外1名

㉗ 指 定 国 AT(広域特許), BE(広域特許), CA, CH(広域特許), DE(広域特許), DK(広域特許), ES(広域特許), FR(広域特許), GB(広域特許), IT(広域特許), JP, LU(広域特許), NL(広域特許), SE(広域特許)

最終頁に続く

## 請 求 の 範 囲

1. 複数のC<sub>4</sub>-オレフィン原料供給点を有するライザー反応器において流動化ゼオライト触媒の存在下、少なくとも5:1のC<sub>4</sub>-C<sub>6</sub>芳香族炭化水素のC<sub>4</sub>-オレフィンに対する重量比にてC<sub>4</sub>-オレフィンを含んで成る原料ストリームをC<sub>4</sub>-C<sub>6</sub>芳香族炭化水素を含んで成る原料ストリームと接触させて、C<sub>4</sub>-C<sub>6</sub>芳香族炭化水素をC<sub>4</sub>-オレフィンによりアルキル化して必要なアルキル芳香族炭化水素生成物を生成することを含んで成る、アルキル芳香族炭化水素の製造方法。

2. ライザー反応器は下方ライザー領域および上方流動化触媒床領域を有して成り、複数のオレフィン原料供給点は反応器のライザー領域の高さに沿って、あるいはライザー領域および上方流動化触媒床領域の高さに沿って離れている請求の範囲第1項記載の方法。

3. C<sub>4</sub>-オレフィン性原料ストリームおよびC<sub>4</sub>-C<sub>6</sub>芳香族炭化水素原料ストリームの接触を350~900℃(177~422℃)の温度および20~650 psig(240~4580 kPa)の圧

力で実施する請求の範囲第1項記載の方法。

4. 接触を500~800°F(260~427℃)の温度および120~420 psig(930~3000 kPa)の圧力で実施する請求の範囲第3項記載の方法。

5. ゼオライト触媒は、少なくとも12のシリカのアルミナに対するモル比および1~12の構造指数を有するゼオライトを含んで成る請求の範囲第1項記載の方法。

6. ゼオライト触媒はZSM-5を含んで成る請求の範囲第1項記載の方法。

7. C<sub>4</sub>-炭化水素原料ストリームは、8~50重量%のエテンおよび3~50重量%のプロペンを含んで成り、芳香族原料ストリームは10~95重量%のC<sub>4</sub>-C<sub>6</sub>芳香族化合物を含んで成る請求の範囲第1項記載の方法。

8. ライザー反応器から触媒の一部を取り出し、700~1200°F(371~649℃)の温度において再生領域で水素と取り出した触媒を接触させて、吸収した炭化水素生成物をストリップ

明 細 書  
アルキル芳香族炭化水素の製造方法

し、触媒からコークスを除去し、また、触媒を再生し、その後、再生した触媒をライザー反応器に戻すことを更に含んで成る請求の範囲第1項記載の方法。

9. ライザー反応器から触媒の一部を取り出し、触媒ストリッピング領域において取り出した触媒を不活性ストリッピングガスと接触させて触媒から吸収した炭化水素生成物をストリップし、次に、触媒を再生領域に送り、そこで700~950°F (371~510℃)の温度で触媒を酸素含有ガスと接触させて触媒からコークスを除去して触媒を再生し、再生した触媒をライザー反応器に戻すことを更に含んで成る請求の範囲第1項記載の方法。

10. 芳香族炭化水素のオレフィンに対する重量比が10:1~15:1である請求の範囲第1項記載の方法。

150,062号では、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>オレフィンをガソリンに転化する方法が開示され、該方法は、ゼオライト触媒の存在下、オレフィンを水と接触させることを含んで成る。アメリカ合衆国特許第4,016,218号および第3,751,506号では、ZSM-5を使用するオレフィンによるベンゼンのアルキル化方法が開示されている。アメリカ合衆国特許第4,209,383号では、改質ガソリン中のベンゼンをC<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>オレフィンにより接触アルキル化してガソリンを生成することが開示されている。

本発明は、とりわけガソリン配合ストックとして有用であるアルキル芳香族生成物を生成する方法に存し、該方法は、複数のオレフィン原料供給点を有するライザー反応器内で、流動化ゼオライト触媒の存在下、C<sub>1</sub>-オレフィンをC<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>芳香族炭化水素を含んで成る原料ストリームと少なくとも5:1の芳香族化合物のオレフィンに対する重量比で接触させてC<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>芳香族化合物をオレフィンによりアルキル化して必要なアルキル芳香族生成物を生成する工程を含んで成る。

本発明は、ガソリン配合ストックとして適当なアルキル芳香族炭化水素の製造方法に関する。

最近の製油工業における炭化水素の流動接触分解では、ガソリン生成物価値を本質的に有さない軽質オレフィンを含む大量のC<sub>1</sub>-燃料ガスが生成する。更に、炭化水素の接触改質により、大量のC<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>芳香族炭化水素が生成するが、これは、ガソリン配合ストックとしての価値を有するが、過剰量生成する。本発明は、C<sub>1</sub>-燃料ガスに含まれる軽質オレフィンにより改質ガソリンに含まれるC<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>芳香族化合物をアルキル化してガソリン配合ストックとして有用なアルキル芳香族炭化水素を生成するための接触反応方法を提供し、

チュン (Chen) のアメリカ合衆国特許第3,729,409号では、水素の存在下、改質ガソリンをゼオライト触媒と接触させることにより改質ガソリンの得られるオクタン価を改善する方法が開示されている。ガーウッド (Garwood) らのアメリカ合衆国特許第4,

本発明の方法では、ライザー反応器内で複数オレフィン供給点を使用するため、反応の間、芳香族化合物のオレフィンに対する重量比を高く維持し、軽質オレフィンおよび芳香族化合物のアルキル芳香族化合物への最大限の転化率を達成する。また、芳香族化合物の軽質オレフィンに対する高い重量比によりオレフィンのオリゴマー化反応が最小限になり、コークス生成が減少する。

本発明により、蒸留(分離)、水素化処理、接触改質および流動接触分解を含む通常の石油精製工程を、ライザー反応器を使用する新規ゼオライト触媒プロセスと組み合わせることができ、燃料ガスおよび改質ガソリンプロセスストリームを改質できる。それにより、流動接触分解工程からの燃料ガスストリームおよび接触改質工程からの改質ガソリンストリームからガソリン沸点範囲のアルキル芳香族炭化水素生成物が生成する。

典型的には、本発明の方法を通常の油精製において採用する場合、原油原料を最初に蒸留分離に付して軽質ガス、ガソリン沸点範囲の軽質留出油ナフサ、中間留分、減圧軽油および引出または常圧蒸留

残渣油ストリームを含む幾つかの炭化水素ストリームに分離する。

ナフタストリームを水素化処理して硫黄および窒素化合物を除去し、次に、接触リホームング領域に供給し、そこで、ナフタストリームのオクタン価を増やし、芳香族炭化水素の濃度が増加して副生物として水素が生成する。

また、中間留分も水素化処理されてケロシンおよびジェット燃料のような生成物を生成する。

減圧残渣油は流動接触分解(FCC)領域に送られ、そこで軽質ガソリン沸点範囲留分、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>オレフィンおよびパラフィンを含む燃料ガスならびに重質留分が生成する。FCC装置は、流動床モレキュラーシーブ接触分解器および触媒再生器を含む。モレキュラーシーブ触媒は、空気再生ガスにより燃焼することにより触媒からコークス付着物を酸化的に除去することにより再生器で連続的に再生される。

常圧蒸留残渣油を大気圧より小さい圧力または減圧蒸留塔に供給してよい。また、常圧蒸留残渣油をプロパン脱アスファルト化および

前に、ストリッピング領域において窒素または水蒸気のような不活性ストリッピングガスと触媒を接触させて触媒上に吸着された炭化水素を除去できる。

ライザー反応器からの流出炭化水素ストリームは分離器に送られ、そこで軽質炭化水素オーバーヘッドストリーム、例えばC<sub>1</sub>-炭化水素が取り出されて吸収器に供給され、そこでC<sub>1</sub>+炭化水素の大部分が吸収除去される。残留するC<sub>1</sub>-炭化水素は頂部で取り出され、ゼオライト触媒反応領域にリサイクルしてよい。分離器からのボトムストリームはC<sub>1</sub>-C<sub>11</sub>アルキル芳香族炭化水素を含むC<sub>1</sub>+炭化水素を含み、脱ブタン器に送られ、そこからオーバーヘッドC<sub>1</sub>-ガスストリームが除去される。脱ブタンされたガソリン生成物はボトム生成物として取り出され、ガソリン生成物プールに供給される。

ライザー反応器で使用するゼオライトアルキル化触媒は、好ましくは、少なくとも12のシリカのアルミナに対する割合、1~12の拘束指数(Constraint Index)および1~200の酸分解

び水素化分解のような処理工程に付してよい。

本発明では、C<sub>1</sub>-C<sub>11</sub>芳香族炭化水素を含む接触改質ガソリンおよびC<sub>1</sub>-C<sub>11</sub>オレフィンおよびパラフィンを含むFCC燃料ガスストリームをライザー反応器の流動化ゼオライト触媒反応領域に供給する。ゼオライト触媒を含むライザー反応器は、芳香族化合物のオレフィンに対する重量比が少なくとも5:1、好ましくは10:1~15:1となるような条件下で操作され、それにより、燃料ガス原料ストリームのエテンおよびプロペンのようなC<sub>1</sub>-オレフィンが、改質ガソリン原料ストリーム中のC<sub>1</sub>-C<sub>11</sub>芳香族炭化水素、特にベンゼンをアルキル化して、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、メチルエチルベンゼン、ジエチルベンゼン、プロピルベンゼンおよびメチルプロピルベンゼンのようなC<sub>1</sub>-C<sub>11</sub>アルキル芳香族炭化水素が生成する。

ライザー反応器の触媒は連続的または間欠的に取り出されて触媒再生領域で再生される。触媒は、水素含有再生ガスまたは酸素含有再生ガスと接触することにより再生され得る。再生工程を実施する

活性を有する中間孔形状選択性結晶アルミノシリケートゼオライトである。運転中の反応器では、コークス付着触媒は、必要な程度の反応可塑性を達成するプロセス条件下、1~80の見掛け活性(アルファ値)を有してよい。好ましいゼオライトの代表的なものは、ZSM-5、ZSM-11、ZSM-12、ZSM-22、ZSM-23およびZSM-35である。ZSM-5が最も好ましいゼオライトであり、アメリカ合衆国特許第3,702,886号およびアメリカ合衆国再発行特許第29,948号に記載されている。他の適当なゼオライトは、アメリカ合衆国特許第3,709,979号、第3,832,449号、第4,076,979号、第4,076,842号、第4,016,245号および第4,046,839号、第4,414,423号、4,417,086号、4,517,396号ならびに第4,542,251号に記載されている。シリカのアルミナに対するモル比が20:1~200:1またはそれ以上の適当なゼオライトを使用できるが、シリカのアルミナに対するモル比が25:1~70:1のZSM-5を使用するのが有利である。

実用的には、ゼオライトを5～95%の適当な無機炭化物結合剤により結合するのが通常である。好ましい触媒は、シリカ-アルミナマトリックス結合剤内に含まれている25～65%のHZSM-5触媒を含んで成る。典型的には、必要な流動化条件で触媒を保持できるようにするために、結合触媒は1～150ミクロンの粒子寸法を有し、平均粒子寸法は20～100ミクロン、より好ましくは40～80ミクロンである。

好ましい軽質ガス原料は、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>アルケン(モノオレフィン)を含み、全C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>アルケンは10～40重量%の範囲にある。非有害成分、例えばメタン、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>パラフィンおよび不活性ガスが存在してよい。パラフィンのあるものは、採用する反応条件および触媒に応じてC<sub>1</sub>+炭化水素に転化される。特に有用な原料は、FCCガスオイル(軽油)分解装置の軽質ガス副生物であり、10～40モル%のC<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>オレフィンおよび5～35モル%のH<sub>2</sub>ならびにC<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>パラフィンおよびN<sub>2</sub>のような不活性ガスの炭化量を含んでよい。原料は主としてエタン、プロペンおよび/またはブタ

ンを含んでよい。

軽質オレフィン原料ガスを以下の第1表に詳細に示す。

第1表

重量%	広い範囲	中間の範囲	好ましい範囲
H <sub>2</sub>	0-10	1-10	1-4
エタン	1-90	3-50	3-25
プロペン	0-99	3-50	3-40
エタン/プロペン	1-99	5-80	5-60

接触改質ガソリン原料は、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>芳香族炭化水素およびC<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>パラフィン炭化水素を含む。C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>芳香族炭化水素には、ベンゼン、トルエン、キシレンおよびエチルベンゼンが含まれる。改質ガソリンを軽質オレフィンと反応させる前に、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>パラフィン炭化水素の全部または一部分を改質ガソリンストリームから除去してよい。

接触改質ガソリン原料を以下の第2表に詳細に示す。

第2表

	広い範囲	中間の範囲	好ましい範囲
比重	0.72-0.88	0.76-0.88	0.76-0.83
沸騰範囲, °F	60-400	80-400	120-220
°C	16-204	27-204	49-160
重量%	広い範囲	中間の範囲	好ましい範囲
ベンゼン	1.0-99	2-60	10-40
トルエン	2.0-60	10-40	10-25
C <sub>1</sub> 芳香族(1)	0-60	0-50	0-5
C <sub>1</sub> -C <sub>4</sub> 芳香族	5-100	10-95	35-75

#### (1)キシレンおよびエチルベンゼン成分

軽質オレフィン原料中のエタンおよびプロペンは、オレフィン原料の80～100重量%、好ましくは90～100重量%、より好ましくは95～100重量%の量でアルキル芳香族化合物に転化される。ベンゼン、トルエンおよびC<sub>1</sub>芳香族化合物を含む接触改質ガソリン原料中のC<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>芳香族化合物は、原料の5～80重量%、好ましくは20～50重量%の量でアルキル芳香族化合物に転化さ

れる。未反応芳香族原料は、ライザー反応器にリサイクルしてよい。

先に説明したように、本発明の方法は、反応器のライザー領域に複数のオレフィン原料供給点を有するライザー反応器を使用して実施される。芳香族炭化水素と軽質オレフィンとの反応は、主として反応器のライザー領域で起こるが、いくつかの転化は反応器の上方流動床領域で起こり得る。

反応器のライザー領域の反応温度は350～900°F(177～482℃)、好ましくは500～800°F(260～427℃)、より好ましくは600～750°F(315～399℃)である。

反応器のライザー領域における反応圧力は、20～650psig(240～4580kPa)、好ましくは120～420psig(930～3000kPa)、より好ましくは150～250psig(1140～1830kPa)である。

触媒の改質ガソリン原料に対する重量比は0.5:1～50:1、好ましくは1:1～10:1、より好ましくは3:1～7:1である。芳香族炭化水素のオレフィン炭化水素に対する重量比は反応を

通じて少なくとも5:1、典型的には7:1~20:1、好ましくは10:1~20:1、より好ましくは12:1~15:1である。

反応器のライザー輸送領域における輸送ガス速度は、典型的には5~100フィート/秒(1.5~30 m/sec)、好ましくは5~30フィート/秒(1.5~9.1 m/sec)、より好ましくは10~20フィート/秒(3~6.1 m/sec)である。

上方流動床の使用は本発明の別の態様である。ライザー反応器を上方流動床無しで使用してよい。

上方流動床を使用する場合、反応器の上方流動床領域の流動化ガス速度は、0.3~4フィート/秒(0.1~1.2 m/sec)、好ましくは1~3フィート/秒(0.3~0.9 m/sec)、より好ましくは1~1.5フィート/秒(0.3~0.5 m/sec)である。反応器の上方流動床領域は、乱流支配流動床として操作するのが好ましい。

反応器のライザー領域における炭化水素原料と触媒との接触時間は、典型的には1~20秒、好ましくは3~10秒である。

反応器のライザー領域は10~100フィート(3~30 m)、

比を7:1~20:1、好ましくは10:1~15:1に維持するために、複数の原料供給点を經由してオレフィン原料を實質的に均一に分配できる。

ライザー反応器の流動床領域は、使用する場合であれば、5~30フィート(1.5~9.1 m)、典型的には5~20フィート(1.5~6 m)の高さであってよい。流動床の直径は1~30フィート(0.3~9.1 m)、典型的には2~6フィート(0.6~1.8 m)であってよい。

1つまたはそれ以上の内部気-固分離サイクロンまたは外部焼結金属フィルターにおいて反応領域の頂部希薄相の炭化水素ガス生成物から触媒粒子が分離される。分離された触媒の全部または少なくとも一部分はライザー反応器にリサイクルされる。

アルキル芳香族炭化水素生成物ガスは400~800°F(204~427℃)、好ましくは600~750°F(315~399℃)、より好ましくは650~750°F(343~399℃)で反応器の頂部から除去され、更に処理される。

典型的には20~60フィート(6~18 m)の高さであってよい。

ライザー領域の直径は0.1~1フィート(0.03~0.3 m)、典型的には0.1~0.5フィート(0.03~0.15 m)である。

ライザー反応器の高さに沿って2~8個、例えば2~6個、典型的には2~4個のオレフィン原料供給点が存在してよい。原料供給点のこの数は、ライザー反応器の底部の原料供給点を含んでいる。

複数の原料供給点は、反応器の高さに沿って、好ましくはライザー領域の高さに沿って5~25フィート(1.5~7.6 m)、典型的には5~15フィート(1.5~4.6 m)離れており、最初の供給点は反応器の底部にある。

しかしながら、オレフィン原料供給点を反応器の上方流動触媒床領域に設けてよく、上述のように数えたオレフィン原料供給点に含めてよい。複数のオレフィン原料供給は、反応の間の反応領域における所望の高い芳香族化合物のオレフィンに対する比を維持する。

ライザー反応器において反応器のライザー領域および/または上方流動触媒床領域における芳香族化合物のオレフィンに対する重量

本発明におけるゼオライト触媒上での軽質オレフィンガス原料の接触改質ガソリン原料との接触により以下の生成物が生成する。

軽質オレフィンガス原料のエテンおよびプロペン成分は、接触改質ガソリン原料のC<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>芳香族化合物と反応してこれらをアルキル化し、主としてC<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>アルキル芳香族炭化水素を生成し、これらは自体ゼオライト触媒により転移およびトランスアルキル化することがある。

得られるC<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>アルキル芳香族炭化水素生成物にはC<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>低級アルキル置換芳香族炭化水素、例えばメチル、エチル、プロピルおよびブチルベンゼン化合物が含まれる。C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>アルキル芳香族炭化水素生成物は、上述の低級アルキル置換基の1つまたはそれ以上を含むことがあるが、それは置換基の炭素原子の総数は5を越えることはないことを前提とする。典型的なC<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>芳香族炭化水素、即ち、アルキル芳香族炭化水素には、トルエン、エチルベンゼン、キシレン、メチルエチルベンゼン、プロピルベンゼン、トリメチルベンゼン、メチルプロピルベンゼン、ブチルベンゼン、テ



トラメチルベンゼン、メチルブチルベンゼンおよびエチルベンゼンが含まれる。

C<sub>9</sub>-C<sub>11</sub>アルキル芳香族炭化水素は、出発物質より高いオクタン価を有し、ガソリン配合ストックの機能的なオクタン品質を良好にする。

アルキル化反応は、主としてオレフィンのオリゴマー化反応により少量の軽質オレフィン原料を望ましくないコークス副生物に転化する。このコークスは触媒に付着し、コークスが形成されると、触媒が部分的に失活する。付着コークスおよび吸収した炭化水素を含む部分的に失活した触媒は、触媒再生領域において触媒を酸素含有ガスまたは酸素含有ガスと接触させることにより再生できる。

触媒を再生して触媒の孔および空隙に含まれている吸収した炭化水素生成物回収するために、付着コークスおよび吸収炭化水素生成物を含む部分的に失活した触媒の一部をライザー反応器の上方部分からもしくは（使用する場合）流動床から連続的または間欠的に取り出して触媒再生領域に送る。

操作してよい。再生器における触媒の滞留時間は、0.1～1時間、典型的には0.5～1時間である。

酸素再生を実施するために、触媒孔に吸収炭化水素生成物を含む部分的に失活した触媒の一部をライザー反応器の上方流動部分、例えば使用するなら、流動床から連続的または間欠的に取り出し、ストリップング領域に送り、そこで不活性ガスにより吸収炭化水素を除去する。次に、ストリップされた触媒を触媒再生領域に送り、そこで空気のような酸素含有ガスを使用するコークスの燃焼により付着コークスを酸化的に除去する。典型的にはライザー反応器の触媒インベントリーの1～400%/hr、好ましくは5～200%/hr、より好ましくは10～150%/hrをストリップングおよび再生のために取り出す。

部分的に失活した触媒はストリッパーベッセルに送られ、ライザー反応器の温度より10～200°F（5～110℃）低い温度で流動床としてストリッパーベッセルで保持される。ストリッパーベッセルは、再生器の圧力のほぼ±20psi（140kPa）以内の圧力

接触的な（触媒反応による）コークス生成は典型的にはオレフィン原料の0.005～1重量%、例えば0.005～0.3重量%、より典型的には0.005～0.1重量%である。本発明の態様では、コークス生成はオレフィン原料基準で0.001～0.025重量%、例えば0.001～0.02重量%である。

酸素再生を実施するために、触媒再生器において部分的に失活した触媒を接触改質器からの酸素ガスと接触させる。ライザー反応器の触媒インベントリー（Inventory）の4～800%/hr、好ましくは10～200%/hr、より好ましくは12～170%/hrを再生のために取り出す。酸素ガスは、触媒を流動床として保持するのに十分な割合で再生器の底部に供給する。触媒再生領域の温度は、450～1400°F（232～760℃）、好ましくは700～1200°F（371～649℃）、より好ましくは700～1000°F（371～538℃）で保持する。触媒再生領域の圧力は、一般的にはライザー反応器とほぼ同じ操作圧力で保持する。しかしながら、再生器は、より低い圧力、例えばほぼ大気圧と同じ圧力で

維持される。触媒は、床を流動化するのに十分な割合で酸素または水蒸気のような不活性ストリップングガスを供給することにより流動床として保持される。

ストリップング領域において部分的に失活した触媒から実質的に全部のアルキル芳香族生成物を除去してこれらを回収し、実質的に付着コークスだけが触媒に残ることになる。

ストリップングされた触媒をストリップング領域から取り出して触媒再生領域に送り、そこで触媒を流動床で保持する。流動床において部分的に失活した触媒は、空気のような酸素含有再生ガスと接触し、触媒に付着したコークスが燃焼して触媒からコークスが除去されて触媒が再生される。好ましい再生ガスは、容易に入手でき、かつ、低コストであるので約21%の酸素を含む空気である。空気再生ガスを容易に入手できる製油所の源は、FCC触媒再生装置への空気再生装置からのものである。

再生領域への分配プレートを介して十分に過剰量の酸素含有再生ガスを再生器の底部に供給し、700～1000°F（371～5

38℃)、好ましくは700~950°F(371~510℃)、より好ましくは800~900°F(427~482℃)の再生領域の温度を維持し、流動化条件で触媒を保持するのに十分な流動化ガスを供給する。再生器で冷却コイルを使用して再生温度のコントロールを助長してよい。再生領域は、ライザー反応器より高いまたは低い圧力で操作してよい。再生器の圧力は、30~450 psig(310~1480 pKa)、例えば30~200 psig(310~1480 pKa)、典型的にはライザー反応器とはほぼ同じ圧力で維持する。触媒粒子は、1つまたはそれ以上の気-固分離サイクロンにより再生領域の頂部希薄相でコークスおよび酸化ガスの燃焼生成物を含む流動化ガスから分離され、分離された触媒は、再生器に戻される。再生ガス中の過剰の酸素ならびに二酸化炭素および水を含む燃焼生成物は、流出ガスとして再生器から除去される。流出ガスは、FCC触媒再生装置に供給し、そこで過剰の酸素を燃焼させるのが好都合である。

再生触媒は、触媒の重量基準で僅かに0.001~0.2重量%

炭化水素は、軽質留分ナフサストリームとしてライン5を経由して取り出され、中間留分ストリームはライン6を経由して取り出され、また、減圧軽油(ガスオイル)ストリームはライン7を経由して取り出される。残留する常圧蒸留残油はライン8を経由して取り出され、更に処理される。

ナフサフラクションおよび中間留分フラクションは、それぞれ水素化処理領域9および10に送られる。中間留分水素化ストリームはライン11に取り出されるが、ケロシン沸点範囲の炭化水素である。水素化ナフサストリームはライン12を経由して改質器13に送られ、そこで接触改質されてC<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>芳香族炭化水素およびC<sub>5</sub>+パラフィン炭化水素ならびに水素を含む改質ガソリンを生成する。水素はオーバーヘッドでライン14に副生物として除去される。接触改質ガソリンはライン15を経由して分離(蒸留)塔またはスプリッター16に送られ、そこでC<sub>5</sub>+パラフィン炭化水素の一部分はライン23を経由して除去され、ガソリン生成物プールに供給してよい。C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>芳香族炭化水素、特にベンゼン、残留する未分離

好ましくは0.01~0.1重量%、より好ましくは0.01~0.05重量%の量で残留炭素を含み、再生領域から取り出されて反応領域に供給され、新しい芳香族化合物およびオレフィン原料と接触する。

本発明を添付図面を参照して更に説明する。

第1図は、本発明のアルキル化方法を組み合わせた油精製の一部のフローダイヤグラムである。

第2図は、本発明の1つの例のアルキル化方法を実施するための装置の模式図を示す。

第3図は、本発明の別の例のアルキル化方法を実施するための装置の模式図を示す。

第1図を参照すると、図示した精製工程の場合、原油原料はライン1を経由して原油蒸留装置2に供給され、異なる沸点範囲を有するフラクションに分離される。C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>軽質炭化水素および原料中に溶解していたガスはライン3を経由してオーバーヘッドから除去され、ガス回収領域(図示せず)に送られる。軽質の通常は液体の

C<sub>5</sub>+パラフィン性炭化水素および存在し得るC<sub>1</sub>-パラフィン性炭化水素を含む残りの改質ガソリンは、分離塔16からライン17を経由してライザー反応器29に供給される。従って、分離塔16は、反応器29に供給されるC<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>軽質芳香族炭化水素ストリームの量および組成をコントロールするように機能する。

別法では、特に軽質の改質ガソリンストリームの場合、分離工程を省略して、改質ガソリン流出物ストリーム全体をライザー反応器29に直接供給してよい。

ライン7を経由して取り出される減圧軽油は、分離塔19を含む流動床接触分解領域18に送られる。分離塔19のオーバーヘッド気相ストリームは、ライン20に取り出され、圧縮機20aで圧縮され、凝縮器21で凝縮され、その後、レシーバー(受容器)22に送られる。レシーバー22に集められた凝縮物はライン24を経由して第1吸収器25に送られる。C<sub>1</sub>-オレフィンを含むレシーバー22の未凝縮ガスはオーバーヘッドでライン26を経由して第1吸収器25に供給される。別法では、C<sub>1</sub>-オレフィンを含むレ

シーバー22の未凝縮ガスをライン26、26aおよび28を経由して直接ライザー反応器29に供給してよい。流動接触分解器の分離塔19から液体ストリームがライン27を経由して取り出され、熱交換器27aで冷却され、第1吸収器25の頂部に供給される。C<sub>4</sub>-オレフィンを含むオーバーヘッドガスストリームが吸収器25からライン28に取り出され、ライン28aおよび28bを経由してゼオライト触媒ライザー反応器29に供給され、そこでライン17を経由して供給されるC<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>芳香族化合物を含む接触改質ガソリンと接触する。

C<sub>4</sub>+ガソリン生成物を含む第1吸収器25からのボトムライン30は、図示しない手段により脱ブタンされて処理され、ガソリン生成物プールに供給される。

ライン28、28aおよび28bのC<sub>4</sub>-原料中のエチンおよびプロペンは、ライザー反応器29でC<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>芳香族化合物と接触して、芳香族化合物をアルキル化してアルキル芳香族炭化水素ガソリン生成物を生成する。ライザー反応器29の生成物は、ライン31

ポンプ101および熱交換器102を経由して取り出され、ライザー反応器29の底部の分配プレート105に供給される。熱交換器102は、C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>改質ガソリンをライザー反応器に供給する前にこれを予熱する。C<sub>4</sub>パラフィンストリームをライン103およびバルブ手段104を経由して取り出して、ガソリンプールに送ってよい。C<sub>4</sub>パラフィンの残りをライン104aを経由してスプリッター16にリサイクルしてよい。

ライン28のC<sub>4</sub>-軽質オレフィン燃料ガス (fuel gas) をライン28a、ライン28bおよびライン28cとして3つの部分に分離する。燃料ガスの20~50%をライン28aを経由して供給し、ライン17のC<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>改質ガソリン原料と混合し、ライザー反応器の底部にある分配プレート105に供給する。燃料ガス原料の20~40%を反応器のライザー領域の高さの中間点にてライン28bを経由して供給し、燃料ガス原料の残っている20~40%を反応器のライザー領域の高さの上方点にてライン28cおよび上方流動触媒床領域のライン28dを経由して供給する。C<sub>4</sub>-燃料ガス原

料は、反応の間、反応器のライザー領域ならびに上方流動触媒床領域においてC<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>芳香族化合物の燃料ガス原料中のC<sub>4</sub>およびC<sub>4</sub>-オレフィンの重量比が12:1~15:1に保持されるような方法で、ライン28a、ライン28b、ライン28cおよびライン28dを経由して分配される。

C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>芳香族化合物およびC<sub>4</sub>-燃料ガスは、触媒戻りライン106および流量コントロール手段107を経由してライザー反応器29の底部に供給される再生されたZSM-5触媒および触媒リサイクルライン112を経由して供給されるリサイクル触媒と接触する。再生されたおよびリサイクルされる触媒は、反応器のライザー領域108で上方流動触媒床領域109に持ち上げられる。C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>芳香族化合物、C<sub>4</sub>-燃料ガスおよびアルキル芳香族生成物は、反応器のライザー領域における触媒のリフトガスとして作用する。

アルキル化反応は、600~700°F (315~371℃) の温度および150~250 psia (1135~1825 kPa) の圧力で主としてライザー領域において実施される。

第2図を参照すると、1つの好ましい例において、C<sub>4</sub>-C<sub>10</sub>芳香族改質ガソリンフラクションは、スプリッター16からライン17、

反応熱は、冷たいまたは部分的にのみ予熱された改質ガソリンおよび冷たいまたは部分的にのみ予熱されたC-燃料ガス原料を使用することにより、反応領域から部分的または完全に除去できる。

反応器のライザー領域における輸送ガス速度は10~20フィート/秒(3~6 m/sec)である。希薄固体ガス相は反応器の頂部から取り出され、焼結金属フィルターを有する気-固分離領域111に送られ、そこで固体触媒粒子は炭化水素ガスから分離される。分離された触媒粒子の全部または少なくとも一部分は、触媒リサイクルライン112を経由してライザー反応器の底部に戻され、触媒戻りライン106を経由して供給される再生触媒と混合される。分離された炭化水素生成物はライン113を経由して取り出され、分離ベッセル114に供給される。アルキル芳香族生成物を含むC+ガソリン炭化水素ストリームはライン115を経由して取り出される。C-炭化水素を含むオーバーヘッドストリームは、ライン116を経由して取り出され、FCCスポンジ(sponge)吸収器に供給される。

炭はライン125を経由して再生器119から除去され、分離および追加の処理のために取り出される。別法では、取り出された炭化水素の全部または一部分をライン126を経由してライザー反応器に戻してよい。再生器の希薄相127の触媒粒子は、サイクロン分離器28で流動化ガスから分離され、ジップレグ129を経由して再生領域に戻される。

再生器からの流出ガスを処理して、水素再生ガスを炭化水素生成物から分離してよく、分離された水素を再生器にリサイクルするか、あるいは回収してよい。

わずかに少量の残留炭素を含む再生された触媒は、触媒取り出しライン106およびバルブコントロール手段107を経由して再生器から取り出され、ライザー反応器29の底部に供給され、新しい改質ガソリンおよび燃料ガス原料と接触する。

第3図において、本発明の別の例のライザー反応器の構成および操作は第2図の例の場合と同様である。しかしながら、第3図の例では、部分的に失活した触媒の再生は酸素により行われる。従って、

改質ガソリン原料および燃料ガス原料のライザー反応器における滞留時間は3~7秒である。

この例では、部分的に失活した触媒の再生は酸素により行われる。従って、触媒インベントリーの12~170%/hrが反応器の上方流動床領域から連続的に取り出され、触媒出口手段117によりバルブコントロール手段118を経由して触媒再生器119に送られる。ライン117の部分的に失活した触媒は、改質器13からライン120を経由して供給される水素再生ガスに同伴され、ライザー121を経由して再生器ベッセル119の上方部分に輸送される。水素再生ガスの主要部はライン122および分配器プレート123を経由して再生器119に供給され、流動床124で触媒の流動化が行われる。十分量的の水素再生ガスが再生器に供給され、触媒が流動床として維持される。

再生器は、700~1200°F(371~649℃)の温度およびライザー反応器とはほぼ同じ圧力で維持される。

ストリップされた炭化水素および水素化されたコークス炭化水

触媒インベントリーの5~150%/hrが反応器の上方流動床領域から連続的に取り出され、バルブコントロール手段131を経由して触媒出口手段130により触媒ストリッパーベッセル132に送られる。

部分的に失活した触媒は、再生器の圧力の約±20 psi内の圧力でストリッパー領域133において流動床として維持され、空素のような不活性ストリップングガスと接触する。空素ストリップングガスは、ストリップング領域133で流動床を維持するのに十分な割合でライン134および分配プレート135を経由してストリップング領域の底部に供給される。ストリップング領域において、部分的に失活した触媒から、実質的に全部の炭化水素生成物が除去され、実質的に付着コークスだけが触媒上に残る。ストリップされた炭化水素生成物は、炭化水素の回収のために出口ライン136および137を経由して反応器に戻される。

付着コークスを含むストリップされた触媒は、ストリップ触媒出口ライン138およびバルブコントロール手段139を経由してス

トリッピング領域から取り出される。ストリップされた触媒は、ライン140を経由して供給される空気再生ガスに同伴され、ライザー141を経由して再生器ベッセル142の上方部分に送られる。再生ガスの大部分は、ライン143および分配器プレート144を経由して再生器142に供給され、再生領域の流動床145でストリップされた触媒が流動化される。

ストリップされた部分的に失活した触媒は、再生器142の流動床で空気のような酸素含有ガスと接触し、コークスが燃焼し、触媒からコークスが除去されて触媒が再生される。十分量の酸素含有再生ガスがライン143および分配プレート144を経由して再生領域に供給され、触媒が流動床として維持される。流動床の温度は、再生領域に供給される酸素含有ガスの量をコントロールすることにより800~900°F (427~482℃)に維持される。再生器の圧力は、ライザー反応器の圧力とほぼ同じである。再生ガスは、FCC触媒再生器への空気再生ガス原料から供給してよい。

触媒粒子は、サイクロン分離器147において再生器の頂部希薄

い。

本発明の以下の実施例により更に説明する。

#### 実施例

本発明の第2図の態様の装置および方法を使用して流動床ライザー反応器においてプロセスを実施する。平均定常状態アルファ値が510のH-ZSM5を使用する。反応器のライザー領域の温度は約850°F (454℃)であり、圧力は約150 psig (1135 kPa)である。オレフィン原料を、ライザー反応器の高さに沿って間隔をあけた3つの供給点を経由して供給する。オレフィン原料は、反応器のライザー領域における芳香族化合物のオレフィンに対する重量比を7:1に維持するように3つの供給点を経由して分配する。

オレフィンおよび改質ガソリン原料ストリームの組成を以下の第3表に示す。

相146のコークスおよび酸化ガスの燃焼生成物を含む流動化ガスから分離される。分離された触媒は、ジブレグ148を経由して再生領域に戻される。再生燃焼ガスおよび過剰の酸素を含む流出ガスは出口ライン149を経由して再生器から取り出され、FCC触媒再生器に供給し、そこで過剰の酸素を燃焼させるのが好都合である。

酸素再生領域における触媒の滞留時間は20~180分である。僅かに少量の残留炭素、典型的には触媒の重量基準で0.05重量%以下、例えば約0.01~0.05重量%を含む再生触媒を触媒取り出しライン106およびバルブコントロール手段107を経由して取り出し、ライザー反応器29の底部に供給し、新しい改質ガソリンおよび燃料ガス原料と接触させる。

ストリップされた炭化水素をライザー反応器29に供給する前に、ライン136のストリップされた炭化水素を処理して分離し、空気をストリップ領域にリサイクルしてよい。別法では、ストリップされた炭化水素を別に処理して空気および炭化水素を回収してよ

### 第 3 表

#### 原料ストリーム組成

オレフィンガス	重量%
水素	2.3
エタン	12.2
プロペン	12.2
改質ガソリン	重量%
ベンゼン	5
トルエン	11.5
C <sub>9</sub> 芳香族化合物	18

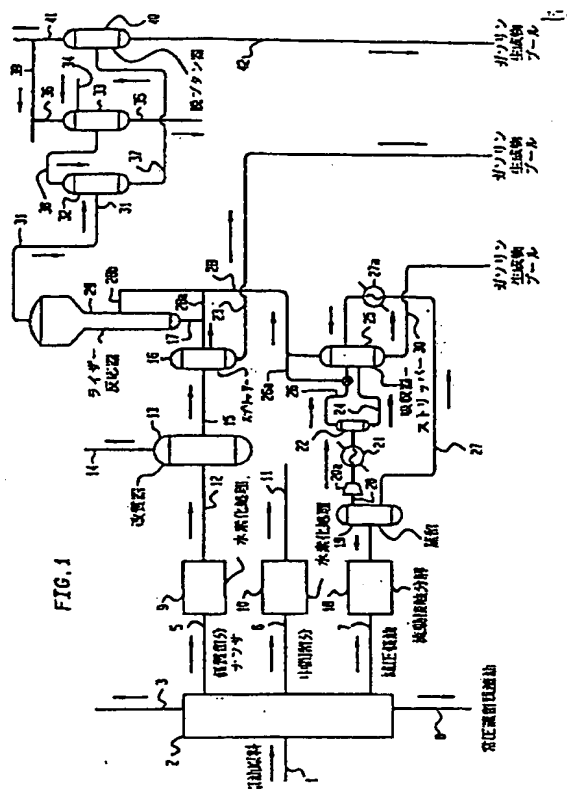
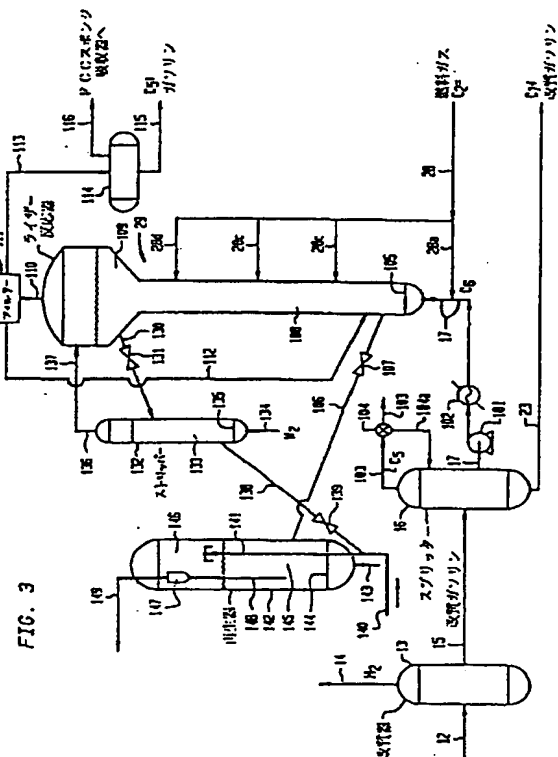
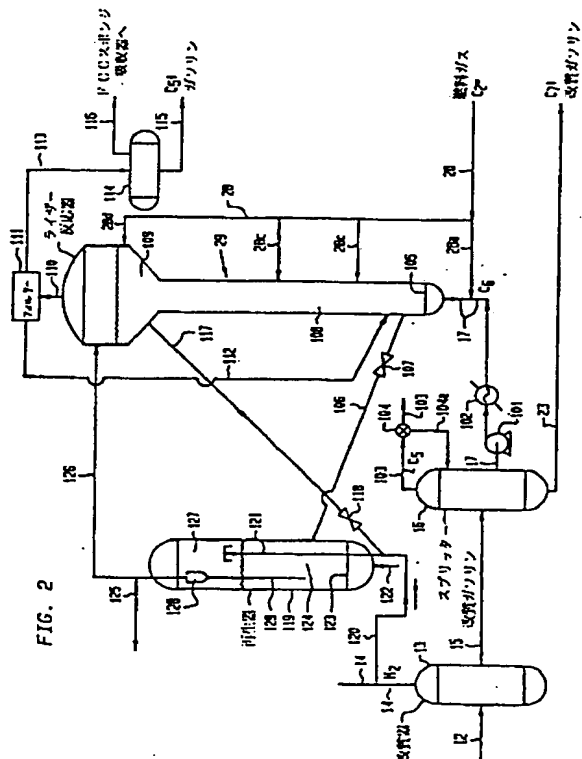
比較のため、オレフィン原料の全部をライザー反応器の底部に供給し、改質ガソリン原料と混合した以外は、この方法を繰り返した。オレフィン原料の単一供給点の結果、反応器のライザー領域における芳香族化合物のオレフィンに対する重量比は3.5:1である。

各ケースにおける流出炭化水素ガストリームを分析し、得られた結果を以下の第4表に示す。

第 4 表

芳香族/ オレフィン 重量比	芳香族のアル キル芳香 族への転化 率、重量%	オレフィン原料 のアルキル芳香 族への転化率、 重量%	オレフィン 基準のコーグ ス、重量%
本発明 7 : 1	30	90	0.007
比較例 3.5 : 1	26	85	0.030

上記データは、ライザー反応器において複数オレフィン原料供給を採用して芳香族炭化水素のオレフィン原料に対する重量比を大きく維持することによる、芳香族炭化水素の転化率の増加およびオレフィン炭化水素のアルキル芳香族炭化水素への転化率の増加ならびにコールス生成の実質的な減少を示す。



FOREIGN INFORMATION SECTION FROM THE SECURE BAPTIST		REF ID: A66064
X P	HQ, 89/07584 (RESCUE et al.) 25 August 1989, all pages	1-10
<b>V. <input type="checkbox"/> OBSERVATIONS WERE CERTAIN CLAIMS WERE FOUND UNRELIABLE *</b>		
This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17B(2) of the following Convention:		
<b>L <input type="checkbox"/> Claim numbers</b> _____ because they relate to subject matter if not reported to be performed by this Authority, separately.		
<b>A <input type="checkbox"/> Claim numbers</b> _____ because they relate to parts of the international publication not so far as the prescribed requirements to search in order that no international search can be carried out if, accordingly.		
<b>L <input type="checkbox"/> Claim numbers</b> _____ because they are dispositive claims not stated in accordance with the second and third sentences of PCT Rule 6.1(c).		
<b>VI. <input type="checkbox"/> OBSERVATIONS WHERE UNITY OF INVENTION IS LACKING *</b>		
This International Searching Authority found multiple inventions in this international application as follows:		
<b>A <input type="checkbox"/> An all-requested additional search has been timely paid by the applicant, this international search report covers all designated claims of the international application.</b>		
<b>A <input type="checkbox"/> An only some of the requested additional search has been timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims of the international application for which a search has been made (designated claims).</b>		
<b>A <input type="checkbox"/> An extended additional search has been timely paid by the applicant, this international search report is established in the designated claims (designated in the claims) if it is required by claim structure.</b>		
<b>A <input type="checkbox"/> An all-requested search is not to be carried out without effect pending an additional fee, the International Searching Authority has no basis pending of any additional fee.                     </b>		
<b>Search fee Payable</b>		
<b><input type="checkbox"/> The international search has been recommended by applicant's parent.</b>		
<b><input type="checkbox"/> The parent accompanied the payment of additional search fee.</b>		
(See PCT Rule 6.1(c) and 6.1(d) for more details)		

アメリカ合衆国 08502 ニュージャージー、ベル・ミード、リバービュー・テラス 5番

【公報種別】特許法第17条第1項及び特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第2区分

【発行日】平成9年(1997)12月9日

【公表番号】特表平3-504732

【公表日】平成3年(1991)10月17日

【年通号数】

【出願番号】特願平2-505846

【国際特許分類第6版】

C07C 2/70

15/02

C10G 35/06

// B01J 29/40

C07B 61/00 300

【F I】

C07C 2/70 9734-4H

15/02 9734-4H

C10G 35/06 9279-4H

B01J 29/40 Z 9538-4D

C07B 61/00 300 7419-4H

## 手続補正書

平成 9 年 3 月 19 日

特許庁長官様

1. 事件の要旨

平成02年特許第505846号

2. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

名称 セービル・オイル・コーポレーション

3. 代理人

住所 〒240  
大阪府大阪市中央区船場1丁目3番7号 14Fビル  
富山県事務所  
電話 (05)949-1261  
FAX (05)949-3351

氏名 井村 大 (5214) 青田 浩

4. 補正命令の口付

内容 (出願書面等と同時)

5. 補正の対価

前納金および請求の範囲

6. 補正の内容

次の四行を修正します。

(1) 明細書

(1) 第3頁第4行、「また、」の後に「ライザー反応器内の」を挿入。

(2) 第8頁第8行、「第2」の後に「オンフィン」を挿入。

(3) 第2頁下から第2行、「C<sub>1</sub>-C<sub>2</sub>」の後に「種々の量の」を挿入。

(4) 第8頁下から第2行、「の炭化質」とあるを削除。

(5) 第16頁下から第6行、「ガス」の後に「と接触させることにより、」

を挿入。

(6) 第17頁第8行、「Inventory」の後に「、保持量」を挿入。

(7) 第17頁下から第8行、第19頁第1行および第31頁下から第8行、「割合」とあるを「速度」と訂正。

(8) 第27頁第3行、「オレフィンの」とあるを「に対する」と訂正。

(9) 第27頁下から第1行、「ライザー領域」の後に「108」を挿入。

(10) 第34頁下から第1行、「次に示す。1」の後、改行して、

「 図、添付の請求の範囲の第1項に記載の発明の特に好ましい態様には以下のものが含まれる：

1. 温度を500〜800°F(260〜427℃)の温度および120〜420psig(930〜3000kPa)の圧力で実施する態様。

2. ゼオライト触媒はZSM-5を含んで成る態様。

3. ライザー反応器から触媒の一部を取り出し、100〜1200°F(37〜649℃)の温度において同点温度で水素と取り出した触媒を接触させて、吸収した炭化水素生成物をストリップし、触媒からコークスを除去し、また、触媒を再生し、その後、再生した触媒をライザー反応器に戻すことを含む態様。

4. ライザー反応器から触媒の一部を取り出し、触媒ストリップング領域において取り出した触媒を不活性ストリップングガスと接触させて触媒から吸収した炭化水素生成物をストリップし、次に、触媒を再生領域に戻り、そこで700



〜950°F (371〜510℃) の温度で触媒を酸素含有ガスと接触させて触媒からコークスを除去して触媒を再生し、再生した触媒をライザー反応器に戻すことを要して成る特徴。

(B) 請求の範囲  
引取の通り。

以 上

(別 紙)

# 図 表 の 概 要

1. 複数のC<sub>1</sub>-オレフィン原料供給点を有するライザー反応器において流動化ゼオライト触媒の存在下、C<sub>1</sub>-オレフィンを含んで成る原料ストリームをC<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>芳香族炭化水素を含んで成る原料ストリームと少なくとも5:1の芳香族炭化水素に対するフィン重量比にて混合させて、C<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>芳香族炭化水素をC<sub>1</sub>-オレフィンによりアルキル化して必要なアルキル芳香族炭化水素生成物を生成することを含んで成る、アルキル芳香族炭化水素の製造方法。

2. ライザー反応器は下方ライザー領域および上方流動化触媒床領域を有して成り、複数のオレフィン原料供給点は反応器のライザー領域の底面に沿って、あるいはライザー領域および上方流動化触媒床領域の高さに沿って配列されている請求の範囲第1項記載の方法。

3. C<sub>1</sub>-オレフィン性原料ストリームおよびC<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>芳香族炭化水素原料ストリームの混合を350〜900℃ (177〜482℃) の温度および20〜850 psig (240〜4580 kPa) の圧力で実施する請求の範囲第1項記載の方法。

4. ゼオライト触媒は、少なくとも12のシリカのアルミナに対するモル比および1〜12の炭素数を有するゼオライトを含んで成る請求の範囲第1項記載の方法。

5. C<sub>1</sub>-炭化水素原料ストリームは、8〜50重量%のエチレンおよび3〜50重量%のプロペンを含んで成り、芳香族原料ストリームは10〜95重量%のC<sub>1</sub>-C<sub>4</sub>芳香族化合物を含んで成る請求の範囲第1項記載の方法。

6. 芳香族炭化水素のオレフィンに対する重量比が10:1〜15:1である請求の範囲第1項記載の方法。